

らせん磁性強誘電体における電気分極の磁場による制御

著者	安部 伸行
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	理博第2536号
URL	http://hdl.handle.net/10097/50829

氏名・（本籍）	あべのぶゆき 阿部伸行
学位の種類	博士（理学）
学位記番号	理博第2536号
学位授与年月日	平成22年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科，専攻	東北大学大学院理学研究科（博士課程）物理学専攻
学位論文題目	らせん磁性強誘電体における電気分極の磁場による制御
論文審査委員	（主査） 教授 寺内正己 教授 齊藤英治，有馬孝尚 教授 早川美德（教育情報基盤センター） 准教授 木村宏之

論文目次

第1章 研究の背景と目的

1.1 緒言

1.2 多重強秩序状態における外場応答

1.2.1 強的な秩序状態と外場応答

1.2.2 電気磁気効果

1.2.3 相転移による非線形な物性応答

1.3 磁気秩序によって誘起される強誘電性

1.3.1 磁気秩序によって誘起される強誘電性

1.3.2 磁気的な相互作用の競合

1.3.3 サイクロイド型の磁気構造

1.3.4 Proper-Screw 型の磁気構造

1.3.5 長周期の磁気構造により生じる電気分極

1.4 斜方晶 RMnO_3 ($R = \text{Gd}, \text{Tb}, \text{Dy}$) における磁気強誘電性

1.4.1 結晶構造および電子状態

1.4.2 磁気的な相互作用の競合と長周期の磁気構造

1.4.3 Mn^{3+} のサイクロイド型の磁気構造と強誘電性の発現

1.4.4 磁場誘起電気分極回転

1.4.5 未解決の課題と磁場を用いた電気分極の制御機構の開拓

1.5 本論文の構成

第2章 実験方法

2.1 試料作製および評価

- 2.2 焦電流測定および電気磁気電流測定
- 2.3 誘電率測定
- 2.4 磁場方位の制御
- 2.5 放射光X線回折実験
- 2.6 磁場中での偏極中性子回折実験
- 2.7 偏極中性子回折実験によるベクトルスピンの同定

第3章 斜方晶 RMnO_3 における電気分極回転の微視的な機構

- 3.1 TbMnO_3 における磁場中での偏極中性子回折実験
- 3.2 $^{160}\text{Gd}_{0.7}\text{Tb}_{0.3}\text{MnO}_3$ の $P\parallel a$ 相における偏極中性子回折実験
- 3.3 本章のまとめ

第4章 RMnO_3 における傾き磁場を利用した電気分極制御

- 4.1 TbMnO_3 における磁場誘起電気分極回転
- 4.2 TbMnO_3 における傾き磁場下での電気分極回転
- 4.3 磁場方位走査による電気分極の選択的回転と三次元電気磁気相図
- 4.4 磁場方位走査による電気分極の制御
- 4.5 GdMnO_3 および DyMnO_3 における電気分極の磁場変化
- 4.6 TbMnO_3 および DyMnO_3 における電気分極の回転方向の磁場方位選択性
- 4.7 4f モーメントが無い物質におけるドメイン壁の磁場応答
- 4.8 本章のまとめ

第5章 $\text{Tb}_{1-x}\text{Dy}_x\text{MnO}_3$ におけるドメイン壁の厚さに依存した物性の観測

- 5.1 電気分極回転時に現れるドメイン壁
- 5.2 TbMnO_3 および DyMnO_3 におけるダイナミクス
- 5.3 $\text{Tb}_{1-x}\text{Dy}_x\text{MnO}_3$ における電気磁気相図
- 5.4 電気分極の回転する向きと磁場の傾き方向の対応関係
- 5.5 電気分極の回転に伴う誘電率の変化
- 5.6 ドメイン壁の厚さ
 - 5.6.1 磁気変調波数の不連続な変化
 - 5.6.2 磁気変調周期とドメイン壁の厚さの相対的な関係の変化
 - 5.6.3 磁気異方性定数の変化
- 5.7 本章のまとめ

第6章 総括

参考文献

原著論文リスト

謝辞

論文内容要旨

1. 研究背景と目的

電子が有する電荷自由度に加えスピン自由度も利用することで、デバイスの高機能化あるいはエネルギー利用の高効率化を目指すスピントロニクスの研究は、GMR 効果に代表されるように金属および半導体について盛んに行われている。一方、誘電体では磁性と誘電性の交差相関である「電気磁気効果」についての研究が行われている。特に2003年に反強磁性体 TbMnO_3 において、磁気相転移に伴った強誘電性の発現と、磁場印加によって電気分極の方向が 90° 回転するという巨大な外場応答が発見されたことを契機として、現在までに「磁気秩序が誘起する強誘電性」を有する物質が多数報告されている。この TbMnO_3 の特徴的な物性として、(1) 無磁場下では c 軸方向に電気分極が発現し、 Mn^{3+} は bc 面内でらせんを描くサイクロイド型の磁気構造を形成する。(2) b 軸方向への磁場印加によって、電気分極が c 軸方向から a 軸方向へ 90° 回転する。このような特徴的な物性を示す磁性強誘電体 TbMnO_3 において電荷自由度とスピン自由度の結合を利用することを考える。強磁性体における磁化や強誘電体における電気分極は「+」および「-」という向きの自由度を持ち、それぞれの共役な外場によって制御が可能であるため、不揮発性の記憶素子の原理として用いられている。このため磁性強誘電体においては電荷自由度とスピン自由度の結合を利用するという観点から、電気分極の向きを非共役な外場である磁場によって制御することが期待される。本研究ではらせん磁性強誘電体を対象とし、「電気分極の向きを磁場によって制御する基本原理の開拓」を目的として実験を行った。

2. 実験方法

前述した課題に対し、本研究では単結晶育成、磁場下での電気分極および誘電率の測定、放射光 X 線回折実験、偏極中性子散乱実験などの実験手法を組み合わせることで、巨視的な物性と微視的な機構の両面について研究を行った。

3. 電気分極回転の微視的な機構 (博士論文第3章)

TbMnO_3 では磁場印加によって電気分極が 90° 回転することから、この現象を利用して電気分極の向きを制御することを考えた。しかし、電気分極回転の微視的な機構が明らかになっていなかったため、以下の2つの偏極中性子散乱実験を行うことで電気分極回転の機構を調べた。

- (i) TbMnO_3 について Mn^{3+} の磁気モーメントの成分の磁場変化を調べた。実験から磁場印加下の $P||a$ 相において Mn^{3+} の磁気モーメントは ab 面内に成分を持つことが明らかになった。
- (ii) 磁場を印加しない場合でも $P||a$ 相となる $^{160}\text{Gd}_{0.7}\text{Tb}_{0.3}\text{MnO}_3$ について、 Mn^{3+} の磁気構造と電気分極の向きの対応関係を調べた。実験から $P||a$ 相では Mn^{3+} は ab 面内でのサイクロイド型の磁気構造を形成し、電気分極との対応関係は $P||c$ 相と同じであることが明らかになった。

以上の2つの実験から、 TbMnO_3 における磁場誘起電気分極回転は Mn^{3+} のサイクロイド型の磁気構造が b 軸周りに 90° 回転していることに付随した現象であることが明らかになった。

4. 傾き磁場を利用した電気分極制御 (博士論文第4章)

TbMnO_3 における磁場誘起電気分極回転は、電気分極を誘起する Mn^{3+} のらせん磁気構造が b 軸方向への磁場印加により 90° 回転することに由来する。反強磁性体であるらせん磁性体の磁場応答を考えると、磁場をらせん面に対して垂直に印加する場合と平行に印加する場合ではエネルギーが異なると考えられる。

このため磁場印加方向に ac 面内の成分を加えることでらせん磁気構造の回転方向を制御し、本研究の目的である磁場による電気分極の向きの制御を行うことを試みた。

実験から TbMnO_3 では電気分極回転時の磁場に ac 面内の成分を加えることによって、電気分極が磁場印加軸を通過して選択的に回転することを発見した。 TbMnO_3 と同様に磁場誘起電気分極回転が生じる DyMnO_3 や MnWO_4 においても傾き磁場下において電気分極の選択的回転が生じることを発見した。この場合 TbMnO_3 とは異なり、電気分極は磁場印加方向と垂直な方向を通過して回転した。以上の実験によって、らせん磁性強誘電体では、磁場のみで電気分極の向きを制御することが可能であることを発見した。

らせん磁性強誘電体における傾き磁場下での電気分極の選択的回転の機構を考えると、電気分極の回転する向きと磁場の傾き方向との対応関係が TbMnO_3 と DyMnO_3 では異なるため、らせん磁気構造の一般的な 90° 回転では説明ができない。このため一次相転移であることを反映して電気分極回転時に現れるドメイン壁が選択的に生成されていることにより生じる現象であると考えられる。らせん面が 90° 異なるドメイン間に存在するドメイン壁は、磁気変調周期およびドメイン壁の厚さの相対的な関係によって磁場応答が異なると考えられる。本研究で得られた結果からは、 TbMnO_3 では Mn^{3+} のらせん面が磁場印加方向を通過する薄いドメイン壁が形成され、 DyMnO_3 では磁場印加方向と垂直な方向を通過する厚いドメイン壁が形成されると考えられる。

5. ドメイン壁の厚さに依存した物性の観測（博士論文第5章）

らせん磁性強誘電体における傾き磁場下での電気分極の選択的回転は、電気分極の向きが 90° 異なるドメイン間に存在するドメイン壁の選択的生成の結果であると考えられる。一方、強誘電体におけるドメイン壁の運動は数 100MHz 程度までの低周波領域における誘電率に寄与する。この時ドメイン壁の厚さに応じて易動度が変化し、厚いほど易動度が大きくなることを反映して誘電率が増大すると考えられる。このため、ドメイン壁の厚さが異なると考えられる TbMnO_3 および DyMnO_3 の混晶を作成し、傾き磁場下での電気分極の回転方向と電気分極回転時の誘電率の変化を調べることで、ドメイン壁の厚さと易動度の対応関係を調べた。

実験結果から傾き磁場下での電気分極の回転する向きと電気分極回転時の誘電率の大きさは、共に組成および磁場強度に依存して系統的に変化した。このことは電気分極や誘電率というマクロな物性が、ドメイン壁の厚さという nm 程度の物性の変化に依存して変化していることを表していると考えられる。

6. 総括

本研究によって TbMnO_3 などの磁場誘起電気分極回転を示すらせん磁性強誘電体においては、傾き磁場下での電気分極の選択的回転を利用することで、磁場による電気分極の向きの制御が可能であることが示された。さらに電気分極の回転する向きと誘電率の大きさを比較することで、らせん磁気構造が 90° 回転するときに生じるドメイン壁の厚さに依存した外場応答の変化を見出した。これらは磁気的な相互作用のフラストレーションによって形成されるサイクロイド型の磁気構造の外場応答として一般的な性質であると考えられる。

論文審査の結果の要旨

物質における電気と磁気の相互作用は電気磁気効果と称され、以前より興味を持たれていたが、その効果は小さな線形応答にとどまっていた。しかし、2003年に、歪んだペロブスカイト構造を持つ磁性体 TbMnO_3 で強誘電性が見出され、その電気分極が磁場印加によって90度回転することが報告された。この電気磁気効果は非線形応答であり、また、この効果大きさは従来のものより数十倍大きい。これを契機に、電気分極とらせん磁性との関係が明らかにされ、類似の現象を示す物質が数多く見出されるなど、急速に発展している。

本論文は、らせん磁性強誘電体における電気分極の磁場制御についての学理の確立を目的としている。具体的には、まず、 TbMnO_3 の電気分極の磁場による回転の本質を明らかにするため、強磁場相の磁気構造をスピン偏極中性子回折法により調べた。その結果、電気分極の90度回転は、らせん磁性のスピン回転面がスピン変調軸を中心に90度回転することで生じていることを明らかにした。さらに、この知見に基づき、斜め方向の磁場成分を用いれば、電気分極の回転方向を+90度または-90度のいずれかの選択ができるという仮説を立てた。そのような磁場回転操作ができる測定系を構築し、その仮説の正しさを実証した。電気分極回転方向の傾斜磁場による選択性を応用することで、磁場のみによる電気分極反転にも成功した。

さらに、上記現象の一般性を確かめるために類似のらせん磁性強誘電体数種について研究を行い、一般性を確かめたのみでなく、 TbMnO_3 と DyMnO_3 では電気分極の回転方向が逆であることを明らかにした。申請者は、この奇妙な対比の起源がらせん磁性の90度ドメイン壁の厚さの違いにある可能性を検討し、混晶 $\text{Tb}_{1-x}\text{Dy}_x\text{MnO}_3$ を作成して回転方向の系統的な変化を調べるとともに、厚さの違いから期待される誘電率増大の差を調べた。その結果、ドメイン壁の厚みが分極の回転方向を支配しているという仮説と矛盾しない結果を得た。

以上の成果は競争の激しいマルチフェロイクの物質科学の世界でも先駆的なものである。申請者が試料作製から測定系の構築、実験データの解析に至るまで、中心となって本研究を遂行したことは、自立して研究活動を行うに必要な高度の研究能力と学識を有していることを示している。

従って阿部伸行提出の論文は博士（理学）の学位論文として合格と認める。